

[19]中华人民共和国国家知识产权局

[51]Int. Cl⁷

C04B 35/117

C04B 35/505 C04B 35/622

[12] 发明专利申请公开说明书

[21] 申请号 99113905.4

[43]公开日 2000 年 1 月 19 日

[11]公开号 CN 1241552A

[22]申请日 1999.7.23 [21]申请号 99113905.4

[71]申请人 中国科学院上海硅酸盐研究所

地址 200050 上海市定西路 1295 号

[72]发明人 王宏志 高 濂

[74]专利代理机构 上海华东专利事务所

代理人 潘振苏

权利要求书 1 页 说明书 5 页 附图页数 2 页

[54]发明名称 一种无团聚钇铝石榴石纳米粉体的制备方法

[57]摘要

一种无团聚钇铝石榴石(YAG)纳米粉体的制备方法,属于精细化工领域。本发明的主要特征是以 Y 和 Al 的无机盐水溶液为原料,通过调节 pH 值和添加表面活性剂获得胶状沉淀,在 700—1300℃ 之间煅烧,可获得晶粒尺寸 20 纳米的无团聚或小团聚的、无其它杂相的的钇铝石榴石粉体。该方法的突出特点是,原料采用无机盐,在较低的温度热处理即可获得无团聚、无杂相纳米钇铝石榴石粉体。改变工艺条件,可制备出粒径为 20~100 纳米的粉体。

ISSN 1000-8427 4

权利要求书

1、一种无团聚钇铝石榴石（YAG）纳米粉体的制备方法，包括沉淀、洗涤、干燥、热处理过程，其特征在于：

（1）选用无机盐水溶液为原料，钇和铝离子的浓度分别控制在 0.3-0.0015mol/l 和 0.5-0.0025 mol/l 之间；

（2）表面活性剂为聚丙烯酸、聚乙二醇、聚环氧乙烷、犁酸、吐温 80，所加表面活性剂的量为钇和铝无机盐溶液重量的 0.5 ~ 2.0%；

（3）沉淀过程 pH 值控制在 9-11 之间，并强力搅拌；

（4）沉淀物陈化时间控制在 12-24 小时，水洗后用乙醇脱水；

（5）在 30℃ 温度下长时间真空干燥；

（6）热处理温度控制在 700-1300℃ 之间。

2、按权利要求 1 所述的制备方法，其特征在于所用的无机盐可以是钇和铝的硫酸盐、硝酸盐或氯化物，钇的无机盐还可用市售的 Y_2O_3 溶于强酸中获得。

3、按权利要求 1 所述的制备方法，其特征在于改变工艺参数，使制备的无团聚钇铝石榴石的晶粒尺寸可在 20-100 纳米之间。

4、按权利要求 1 所述的制备方法，其特征在于低于 1000℃ 热处理出现 $Y_3Al_5O_{12}$ 相。

说明书

一种无团聚钇铝石榴石纳米粉体的制备方法

本发明涉及钇铝石榴石纳米粉体的制备方法，属于精细化工领域。

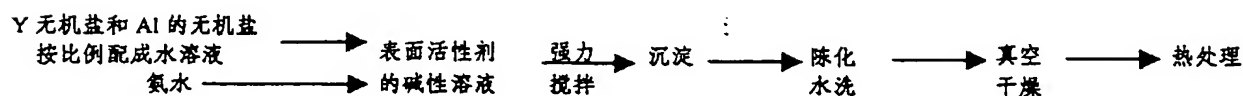
钇铝石榴石 (YAG, $Y_3Al_5O_{12}$) 单晶是一种被广泛应用的激光介质材料，但由于制备大尺寸 YAG 单晶需要特殊的设备和复杂的工艺，所以造价高昂。相对于单晶，多晶陶瓷成本较低，因而透明 YAG 陶瓷就成为很有竞争力的用来替代单晶的激光材料。而要制备透明陶瓷需要有性能优异的 YAG 粉体，即粉体要颗粒细小并且无团聚，这样有利于气孔的排除而使陶瓷致密和透明。YAG 除了在激光材料领域有广泛的应用外，由于具有优异的高温抗蠕变性能，YAG 也是一种非常有前途的高温结构陶瓷。把 YAG 加入 Al_2O_3 中，或者以 YAG 为基体加入纤维、晶须、第二相颗粒，都可以获得性能优异的高温结构陶瓷，在冶金、航天等领域有较大应用。制备结构陶瓷也需要有性能优异的 YAG 粉体，并且这种粉体应当是造价低和易于生产的。另外，YAG 粉体通过掺杂 Ce^{3+} 等离子还可作为超短余辉荧光粉，在彩色电视机、显示器、扫描电子显微镜等领域有广泛应用。

国内外制备 YAG 粉体的方法主要有混合煅烧法、溶胶-凝胶法、水热法、醇热法、沉淀法等，但总体上还缺乏一种适合大规模生产优质 YAG 粉体的方法。例如混合煅烧法是把 Y_2O_3 和 Al_2O_3 按比例混合，在 $1800^\circ C$ 煅烧才能获得纯 YAG，粉体颗粒大并且团聚严重；水热法产量低；而溶胶-凝胶法、醇热法都需醇盐作原料，尽管可以制备出纳米粉体，但价格较高，不

适合大规模生产，并且有较多团聚。沉淀法是较早用来制备 YAG 粉体的方法，其优点是成本低廉，但粉体团聚严重，并且至今未见用此种方法制备纳米粉体的报道。

本发明的目的是提供一种可大规模生产无团聚、无杂相纳米 YAG 粉体的方法。该方法工艺简单，产品质量稳定，由于不需要醇盐做原料，所以成本较低。

本发明提供的制备方法具体过程是：



现将各有关过程详述如下：

1、无机盐的选择：钇（Y）和铝（Al）的无机盐可以选择硫酸盐、硝酸盐或氯化物，Y 的无机盐还可用市售的 Y_2O_3 溶于强酸中获得。

2、无机盐浓度的选择：应控制在一定的浓度，浓度过高粉体容易产生团聚，浓度过低产量少。Y 和 Al 离子的浓度分别控制在 0.3-0.0015mol/l 和 0.5-0.0025mol/l 之间。

3、表面活性剂的选择：可以选择聚丙烯酸、聚乙二醇、聚环氧乙烷、犁酸、吐温 80 等表面活性剂。所加表面活性剂的量为钇和铝无机盐溶液重量的 0.50 ~ 2.0%。

4、沉淀过程中的 pH 值：应控制 pH 值在 9-11 之间，并强力搅拌，保证 Y 和 Al 能够完全沉淀。

5. 沉淀的陈化及洗涤：陈化有利于得到晶粒发育较好的粉体，且能提高粉体的收率及利于沉淀的分离，陈化时间控制在 12-24 小时之间。水洗是为了除去阴离子，如氯离子等，氯离子会严重降低粉体的性能，水洗后用有机溶剂脱水，能减少团聚。本发明选用醇类如乙醇作有机溶剂来脱水。

6. 干燥：干燥的目的是为了除去沉淀吸附的水分，这一过程容易产生团聚，因而采用在 30℃ 长时间真空干燥。

7. 热处理：热处理是为了把沉淀得到的氢氧化物变成氧化物，热处理温度过低，YAG 相转变不完全，热处理温度过高，YAG 颗粒变大。因此热处理温度控制在 700-1300℃ 之间，1000℃ 以下即出现 YAG ($Y_3Al_5O_{12}$) 相。

8. 用本发明提供的方法，改变工艺参数，使制备的无团聚钇铝石榴石 (YAG) 的晶粒尺寸可在 20-100 纳米之间。图 1 是 20 纳米 YAG 粉体的 X-射线衍射图，所有特征峰均为 $Y_3Al_5O_{12}$ 相，未出现 $Y_4Al_2O_9$ 和 $YAlO_3$ 等其它相；图 2 是 20 纳米 YAG 粉体的电子衍射图，衍射环清晰，表明 YAG 相晶型完整；图 3 是 20 纳米 YAG 粉体的透射电镜照片 (12 万倍)，基本上无团聚，由此可见本发明突出的优点是：

1. 制备工艺简单，工艺参数易控制。
2. 原料来源广泛，成本低。
3. 粉体的粒径小，无团聚。
4. 产品质量稳定，纯度高。

下面结合实例进一步说明本发明的创新点而决非限制本发明。

实例 1

把 YCl_3 和 $Al_2(SO_4)_3$ 溶于蒸馏水中，Y 和 Al 离子的浓度分别为 0.3mol/l

和 0.5 mol/l, 把此溶液和氨水同时加入到表面活性剂（聚丙烯酸，分子量为 10000）的碱性溶液中，表面活性剂的量为钇和铝无机盐溶液重量的 1%，调节 pH 值为 10，获得胶状沉淀。陈化 12 小时，过滤，水洗后醇洗，30℃真空干燥，在 1000℃热处理，获得纯 YAG 粉体的粒径为 60 纳米，制备的纳米 YAG 的主要技术指标列于表 1。

表 1

实例	晶相	纯度	颜色	粒径	比表面	PH	颗粒形状
1	$Y_3Al_5O_{12}$	99%	白色	60 纳米	22 米 ² /克	7	粒状
2	$Y_3Al_5O_{12}$	99%	白色	20 纳米	68 米 ² /克	7	粒状
3	$Y_3Al_5O_{12}$	99%	白色	100 纳米	13 米 ² /克	7	粒状
4	$Y_3Al_5O_{12}$	99%	白色	50 纳米	25 米 ² /克	7	粒状

实例 2

把 $Y(NO_3)_3$ 和 $Al_2(NO_3)_3$ 溶于蒸馏水中，Y 和 Al 离子的浓度分别为 0.003mol/l 和 0.005 mol/l, 把此溶液和氨水同时加入到表面活性剂（聚乙二醇，分子量为 2000）的碱性溶液中，表面活性剂的量为钇和铝无机盐溶液重量的 0.8%，调节 pH 值为 9，获得胶状沉淀。陈化 20 小时，过滤，水洗后醇洗，真空干燥，在 900℃热处理，获得纯 YAG 粉体的粒径为 20 纳米，制备的纳米 YAG 的主要技术指标列于表 1。

实例 3

把 $Y(NO_3)_3$ 和 $AlCl_3$ 溶于蒸馏水中，Y 和 Al 离子的浓度分别为 0.03mol/l 和 0.05 mol/l, 把此溶液和氨水同时加入到表面活性剂（吐温 80）的碱性溶液中，表面活性剂的量为钇和铝无机盐溶液重量的 1.5%。调节 pH 值为 11，获得胶状沉淀。陈化 24 小时，过滤，水洗后醇洗，真空干燥，在 1300℃热

处理，获得纯 YAG 粉体的粒径为 100 纳米，制备的纳米 YAG 的主要技术指标列于表 1。

实例 4

用市售的 Y_2O_3 溶于浓 H_2SO_4 中制得 $Y_2(SO_4)_3$ 和 $AlCl_3$ 溶于蒸馏水中，其浓度、沉淀、陈化过程均同实例 1，获得纯 YAG 粉体粒径为 50 纳米。制备的纳米 YAG 的主要技术指标列于表 1。

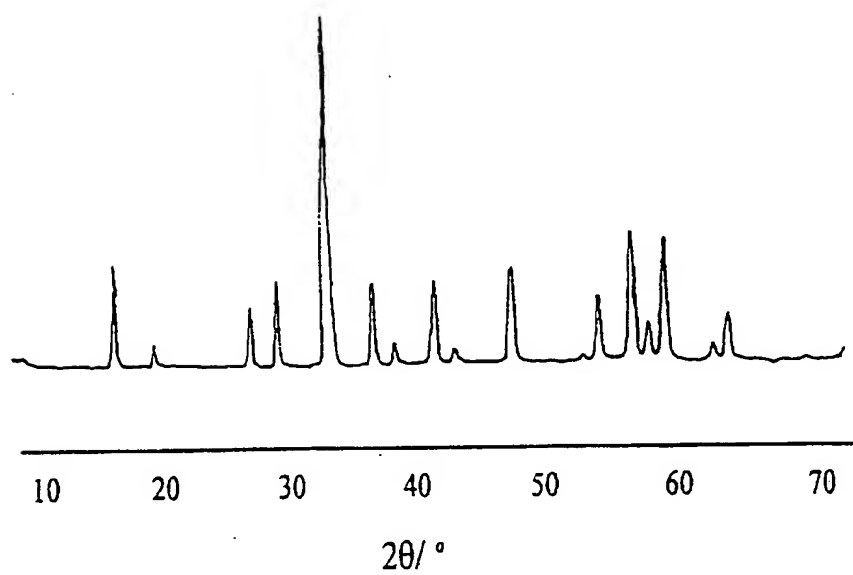
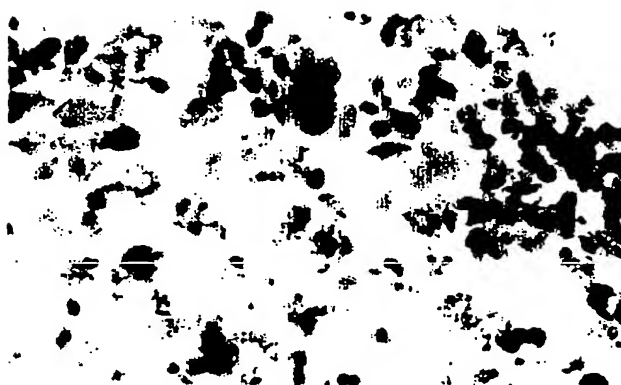


图1



32



100 mm

33

— 2 —